

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 11 September 2000 (11.09.00)	
International application No. PCT/EP00/00576	Applicant's or agent's file reference Le A 33 510-WO
International filing date (day/month/year) 26 January 2000 (26.01.00)	Priority date (day/month/year) 05 February 1999 (05.02.99)
Applicant WEGE, Volker et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:01 August 2000 (01.08.00)☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer Pascal Piriou
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)



PCT ORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
 Internationales Büro
 INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
 INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : <p style="text-align: center; margin: 10px 0;">C08F 8/04, 8/00</p>	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/46259 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 10. August 2000 (10.08.00)		
<table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00576 (22) Internationales Anmeldedatum: 26. Januar 2000 (26.01.00) (30) Prioritätsdaten: <div style="display: flex; justify-content: space-between; margin-top: 10px;"> 199 04 612.3 5. Februar 1999 (05.02.99) DE </div> (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). TEIJIN LIMITED [JP/JP]; 6-7, Minamihommachi 1-chome, Chuo-ku, Osaka-shi, Osaka 541-0054 (JP). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WEGE, Volker [DE/DE]; Bismarckplatz 45, D-47799 Krefeld (DE). DOUZINAS, Konstadinos [GR/DE]; An der Ruthen 1, D-51061 Köln (DE). RECHNER, Johann [DE/DE]; Friedrich-Kramer-Str. 2, D-47906 Kempen (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). </td> <td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> (81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> </td> </tr> </table>			(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00576 (22) Internationales Anmeldedatum: 26. Januar 2000 (26.01.00) (30) Prioritätsdaten: <div style="display: flex; justify-content: space-between; margin-top: 10px;"> 199 04 612.3 5. Februar 1999 (05.02.99) DE </div> (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). TEIJIN LIMITED [JP/JP]; 6-7, Minamihommachi 1-chome, Chuo-ku, Osaka-shi, Osaka 541-0054 (JP). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WEGE, Volker [DE/DE]; Bismarckplatz 45, D-47799 Krefeld (DE). DOUZINAS, Konstadinos [GR/DE]; An der Ruthen 1, D-51061 Köln (DE). RECHNER, Johann [DE/DE]; Friedrich-Kramer-Str. 2, D-47906 Kempen (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).	(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i>
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00576 (22) Internationales Anmeldedatum: 26. Januar 2000 (26.01.00) (30) Prioritätsdaten: <div style="display: flex; justify-content: space-between; margin-top: 10px;"> 199 04 612.3 5. Februar 1999 (05.02.99) DE </div> (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). TEIJIN LIMITED [JP/JP]; 6-7, Minamihommachi 1-chome, Chuo-ku, Osaka-shi, Osaka 541-0054 (JP). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WEGE, Volker [DE/DE]; Bismarckplatz 45, D-47799 Krefeld (DE). DOUZINAS, Konstadinos [GR/DE]; An der Ruthen 1, D-51061 Köln (DE). RECHNER, Johann [DE/DE]; Friedrich-Kramer-Str. 2, D-47906 Kempen (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).	(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i>			
(54) Title: METHOD FOR HYDROGENATING AROMATIC POLYMERS IN THE PRESENCE OF SPECIAL CATALYSTS (54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HYDRIERUNG AROMATISCHER POLYMERE IN GEGENWART SPEZIELLER KATALYSATOREN (57) Abstract <p>A method for hydrogenating aromatic polymers in the presence of catalysts, whereby a metal or mixture of metals from sub-group VIII of the periodic table of elements is used together with an aluminium oxide support and the pore volume of the pore diameter of the catalyst ranges from 1000-10000 Å when measured according to quicksilver porosimetry, generally representing 100-15 % in relation to the overall pore volume when measured according to posimetry.</p> (57) Zusammenfassung <p>Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart von Katalysatoren, wobei als Katalysator ein Metall oder Gemisch von Metallen der VIII. Nebengruppe des Periodensystems zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid eingesetzt wird und das Porenvolumen der Porendurchmesser des Katalysators zwischen 1000 - 10000 Å, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, im allgemeinen 100 - 15 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, beträgt.</p>				

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart spezieller Katalysatoren

5 Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß Metalle der VIII. Nebengruppe zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid vorliegen. Die Katalysatoren besitzen eine spezielle Porengrößenverteilung. Dadurch lassen sich aromatische Polymere bezüglich ihrer aromatischen Einheiten vollständig und ohne signifikanten Abbau der

10 Molekulargewichte hydrieren.

Die Hydrierung aromatischer Polymere ist bereits bekannt. DE-AS 1 131 885 beschreibt die Hydrierung von Polystyrol in Gegenwart von Katalysatoren und Lösungsmittel. Als Lösungsmittel werden aliphatische und cycloaliphatische Kohlenwasserstoffe, Ether, Alkohole und aromatische Kohlenwasserstoffe erwähnt. Als

15 bevorzugt wird ein Gemisch aus Cyclohexan und Tetrahydrofuran genannt. Siliziumdioxid und Aluminiumoxidträger der Katalysatoren werden allgemein erwähnt, deren physikalisch chemische Struktur wird jedoch nicht beschrieben.

20 EP-A-322 731 beschreibt die Herstellung von vorwiegend syndiotaktischen Polymeren auf Basis von Vinylcyclohexan, wobei ein Styrol-basierendes Polymer in Gegenwart von Hydrierungskatalysatoren und Lösungsmitteln hydriert wird. Als Lösungsmittel werden cycloaliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffe, nicht jedoch Ether, erwähnt.

25 Die in DE 196 24835 (= EP-A 814 098) zur Hydrierung von Polymeren mit Ruthenium- oder Palladiumkatalysatoren, bei denen das Aktivmetall auf einem porösen Träger aufgebracht ist, beschreibt die Hydrierung von olefinischen Doppelbindungen von Polymeren.

30

Aromatische Bereiche werden zu weniger als 25 % und im allgemeinen in einem Bereich von 0 bis ungefähr 7 % hydriert. Die Auswahl der Lösungsmittel ist dabei nicht kritisch.

- 5 Ferner ist bekannt (WO 96/34896 = US-A-5,612,422), daß kleine Porendurchmesser (200-500 Å) und große Oberflächen (100-500 m²/g) von Siliziumdioxid unterstützten Katalysatoren bei der Hydrierung von aromatischen Polymeren zu unvollständiger Hydrierung und zu Abbau der Polymerkette führen können. Die Verwendung spezieller Siliziumdioxid unterstützter Hydrierkatalysatoren (WO 96/34896) lassen
10 eine annähernd vollständige Hydrierung bei ca. 20 % igem Abbau der Molekulargewichte zu. Die genannten Katalysatoren weisen eine spezielle Porengrößenverteilung des Siliziumdioxids auf, die dadurch charakterisiert ist, daß 98 % des Porenvolumens einen Porendurchmesser größer 600 Å haben. Die genannten Katalysatoren haben Oberflächen zwischen 14-17 m²/g und mittlere Porendurchmesser von 3800-3900 Å.
15 Verdünnte Polystyrollösungen in Cyclohexan mit einer Konzentration zwischen 1% bis maximal 8 % werden zu Hydriergraden größer 98 % und kleiner 100 % hydriert.

- Die in den genannten Schriften beschriebenen Beispiele zeigen bei Polymerkonzentrationen kleiner 2 % einen Abbau der absoluten Molekulargewichte des hydrierten Polystyrols. Generell führt Molekulargewichtsabbau zu einer Verschlechterung der
20 mechanischen Eigenschaften eines hydrierten Polystyrols.

- Das Vergleichsbeispiel gemäß WO 96/34896 eines kommerziell verfügbaren Katalysators 5 % Rh/Al₂O₃ (Engelhard Corp., Beachwood, Ohio, USA) führt zu einem
25 Hydriergrad von 7 % und zeigt die geringere Aktivität des Aluminiumoxidträgers gegenüber dem Siliziumdioxid unterstützten Katalysator.

- Überraschenderweise wurde nun gefunden, daß bei der Verwendung spezieller Katalysatoren, welche Metalle der VIII. Nebengruppe zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid, wobei der Katalysator dadurch definiert ist, daß höchstens 10 % des
30 Porenvolumens einen Porendurchmesser kleiner 600 Å aufweisen, einen mittleren

Porendurchmesser von größer 1000 Å, eine Oberfläche von größer 3 m²/g besitzen und eine bestimmte Porengrößenverteilung aufweisen, aromatische Polymere vollständig und ohne signifikanten Abbau der Molekulargewichte hydrieren.

- 5 Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart von Katalysatoren, wobei der Katalysator ein Metall oder Gemisch von Metallen der VIII. Nebengruppe des Periodensystems zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid ist und das Porenvolumen der Porendurchmesser des Katalysators zwischen 1000 - 10000 Å, gemessen nach der Quecksilber-
10 Porosimetrie, im allgemeinen 100 - 15 %, bevorzugt 90 - 20 % und ganz besonders bevorzugt 80 - 25 %, insbesondere 70 bis 30 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-
15 Porosimetrie, beträgt.

- Der mittlere Porendurchmesser beträgt, bestimmt nach Quecksilber-
15 Porosimetrie, größer 1000 Å.

- Die Quecksilbermethode ist jedoch nur hinreichend genau für Poren, die größer als 60 Å sind. Porendurchmesser kleiner 600 Å werden daher durch Stickstoffsorption nach Barret, Joyner, Halenda bestimmt (DIN 66 134).

- 20 Die Katalysatoren weisen ein Porenvolumen, gemessen nach der Stickstoffsorption von kleiner 10 %, bevorzugt kleiner 5 %, für Porendurchmesser kleiner 600 Å auf. Das Porenvolumen, gemessen nach der Stickstoffsorption, bezieht sich auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-
25 Porosimetrie.

- Die Bestimmung des mittleren Porendurchmessers und der Porengrößenverteilung erfolgt durch Quecksilber-
25 Porosimetrie gemäß DIN 66 133.

- Der mittlere Porendurchmesser beträgt im allgemeinen 1000 Å bis 10000 Å, vorzugsweise 2000 Å bis 7000 Å, ganz besonders bevorzugt 2500 Å bis 6000 Å .
30

Methoden zur Charakterisierung von Hydrierkatalysatoren werden z.B. in WO 96/34896 (=US-A-5,612,422) und Applied Heterogenous Catalysis, Institute Francais du Petrole Publication, Seite 189-237 (1987) beschrieben.

- 5 Die Katalysatoren bestehen aus Metallen der VIII. Nebengruppe, welche zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid vorliegen.

Aluminiumoxide mit der allgemeinen Summenformel Al_2O_3 treten in verschiedenen Modifikationen auf. Man unterscheidet zum Beispiel das hexagonale $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ und das
10 kubisch flächenzentriertkristallisierte $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$. Unter $\beta\text{-Al}_2\text{O}_3$ versteht man eine Gruppe von Aluminiumoxiden, die kleine Mengen Fremd-Ionen im Kristallgitter enthalten. Es existieren weitere spezielle Modifikationen sowie zahlreiche Übergangsformen zwischen den Aluminiumhydroxiden und Aluminiumoxiden.

- 15 Die Oberfläche des Katalysators wird nach BET (Brunauer, Emmett und Teller) Verfahren durch Stickstoff Adsorption, gemäß DIN 66 131 und DIN 66 132 bestimmt.

Die spezifischen Stickstoff-Oberflächen (BET) betragen im allgemeinen größer
20 $3 \text{ m}^2/\text{g}$, bevorzugt $5 \text{ m}^2/\text{g}$ bis $80 \text{ m}^2/\text{g}$, besonders bevorzugt $8 \text{ m}^2/\text{g}$ bis $60 \text{ m}^2/\text{g}$.

Verwendet werden im allgemeinen Metalle der VIII. Nebengruppe, vorzugsweise Nickel, Platin, Ruthenium, Rhodium, Palladium, ganz besonders bevorzugt Platin und Palladium.

- 25 Der Metallgehalt beträgt, bezogen auf das Gesamtgewicht des Katalysators, im allgemeinen 0,01 bis 80 %, vorzugsweise 0,05 bis 70 %.

Der 50 % Wert der kumulativen Verteilung der Partikelgröße beträgt im diskontinuierlich betriebenen Prozeß im allgemeinen $0.1 \text{ }\mu\text{m}$ bis $200 \text{ }\mu\text{m}$, vorzugsweise $1 \text{ }\mu\text{m}$
30 bis $100 \text{ }\mu\text{m}$, ganz besonders bevorzugt $3 \text{ }\mu\text{m}$ bis $80 \text{ }\mu\text{m}$.

5 Übliche Lösungsmittel für Hydrierreaktionen sind aliphatische oder cycloaliphatische Kohlenwasserstoffe, aliphatische oder cycloaliphatische gesättigte Ether oder deren Gemische, z.B. Cyclohexan, Methylcyclopentan, Methylcyclohexan, Ethylcyclohexan, Cyclooctane, Cycloheptan, Dodecan, Dioxan, Diethylenglycoldimethylether, Tetrahydrofuran, Isopentan, Decahydronaphthalin.

10 Werden aliphatische oder cycloaliphatische Kohlenwasserstoffe als Lösungsmittel verwendet, so enthalten diese vorzugsweise Wasser in einer Menge im allgemeinen von 0,1 ppm bis 500 ppm, vorzugsweise 0,5 ppm bis 200 ppm, ganz besonders bevorzugt 1 ppm bis 150 ppm, zum gesamten Lösungsmittel.

15 Das erfindungsgemäße Verfahren führt im allgemeinen zu einer praktisch vollständigen Hydrierung der aromatischen Einheiten. In der Regel ist der Hydriergrad $\geq 80\%$, vorzugsweise $\geq 90\%$, ganz besonders bevorzugt $\geq 99\%$ bis 100 %. Der Hydriergrad läßt sich beispielsweise durch NMR oder UV-Spektroskopie bestimmen. Das erfindungsgemäße Verfahren führt ganz besonders bevorzugt zu hydrierten aromatischen Polymeren, insbesondere zu Polyvinylcyclohexan, wobei die Menge an Diaden mit syndiotaktischer Konfiguration größer 50,1 % kleiner 74 %, insbesondere 52 bis 70 %, beträgt.

20 Als Ausgangsstoffe werden aromatische Polymere eingesetzt, welche beispielsweise ausgewählt sind aus gegebenenfalls im Phenylring oder an der Vinylgruppe substituiertem Polystyrol oder Copolymere davon mit Monomeren, ausgewählt aus der Gruppe der Olefine, (Meth)acrylate oder Gemische davon. Weitere geeignete Polymere sind aromatische Polyether insbesondere Polyphenylenoxid, aromatische Polycarbonate, aromatische Polyester, aromatische Polyamide, Polyphenylene, Polyxylylene, Polyphenylenvinylene, Polyphenylenethinylene, Polyphenylensulfide, Polyaryletherketone, aromatische Polysulfone, aromatische Polyethersulfone, aromatische Polyimide sowie deren Mischungen, Copolymere, gegebenenfalls Copolymere mit
30 aliphatischen Verbindungen.

Als Substituenten im Phenylring kommen C₁-C₄-Alkyl, wie Methyl, Ethyl, C₁-C₄-Alkoxy, wie Methoxy, Ethoxy, ankondensierte Aromaten, die über ein Kohlenstoffatom oder zwei Kohlenstoffatome mit dem Phenylring verbunden sind, mit Phenyl, Biphenyl, Naphthyl in Frage.

5

Als Substituenten an der Vinylgruppe kommen C₁-C₄-Alkyl, wie Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl in Frage, insbesondere Methyl in α -Position.

10

Als olefinische Comonomere kommen Ethylen, Propylen, Isopren, Isobutylen Butadien, Cyclohexadien, Cyclohexen, Cyclopentadien, gegebenenfalls substituierte Norbornene, gegebenenfalls substituierte Dicyclopentadiene, gegebenenfalls substituierte Tetracyclododecene, gegebenenfalls substituierte Dihydrocyclopentadiene,

15

C₁-C₈-, vorzugsweise C₁-C₄-Alkylester der (Meth)acrylsäure, vorzugsweise Methyl- und Ethylester

C₁-C₈-, vorzugsweise C₁-C₄-Alkylether des Vinylalkohols, vorzugsweise Methyl und Ethylether,

20

C₁-C₈-, vorzugsweise C₁-C₄-Alkylester des Vinylalkohols, vorzugsweise Vinylacetat,

25

Derivate der Maleinsäure, vorzugsweise Maleinsäureanhydrid, Derivate des Acrylnitrils, vorzugsweise Acrylnitril und Methacrylnitril in Frage.

30

Bevorzugte Polymere sind Polystyrol, Polymethylstyrol, Copolymere aus Styrol und mindestens einem weiteren Monomer, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus α -Methylstyrol, Butadien, Isopren, Acrylnitril, Methylacrylat, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und Olefine wie beispielsweise Ethylen und Propylen. In Frage kommen beispielsweise Copolymere aus Acrylnitril, Butadien und Styrol, Copoly-

mere aus Acrylester, Styrol und Acrylnitril, Copolymere aus Styrol und α -Methylstyrol und Copolymere aus Propylen, Dien und Styrol.

5 Die aromatischen Polymere haben im allgemeinen Molekulargewichte (Gewichtsmittel) \bar{M}_w von 1000 bis 10,000,000, vorzugsweise von 60000 bis 1000000, besonders bevorzugt 70000 bis 600000, insbesondere 70 000 bis 480 000, bestimmt durch Lichtstreuung.

10 Die Polymere können eine lineare Kettenstruktur besitzen als auch durch Co-Einheiten Verzweigungsstellen aufweisen (z.B. Propfcopolymere). Die Verzweigungszentren beinhalten z.B. sternförmige Polymere oder andere geometrische Formen der primären, sekundären, tertiären, ggf. quartären Polymerstruktur.

15 Die Copolymere können sowohl statistisch, alternierend als auch als Blockcopolymere vorliegen.

Blockcopolymere beinhalten Di-Blöcke, Tri-Blöcke, Multi-Blöcke und sternförmige Blockcopolymere.

20 Die Ausgangspolymere sind allgemein bekannt (z.B. WO 94/21694).

Die einzusetzende Menge an Katalysator ist beispielsweise in WO 96/34896 beschrieben.

25 Die einzusetzende Menge des Katalysators hängt von dem auszuführenden Prozeß ab; dieser kann kontinuierlich, halb-kontinuierlich oder diskontinuierlich durchgeführt werden.

30 Im kontinuierlichen System ist die Reaktionszeit wesentlich kürzer; sie wird von den Abmessungen des Reaktionsgefäßes beeinflusst. Bei der kontinuierlichen Arbeitsweise sind das Rieselsystem und das Sumpfsystem, beide mit fest angeordneten Katalysa-

toren, ebenso möglich wie ein System mit suspendiertem und z.B. im Kreis geführten Katalysator. Die festangeordneten Katalysatoren können in Tablettenform oder als Extrudate vorliegen.

- 5 Die Polymerkonzentrationen, bezogen auf das Gesamtgewicht aus Lösungsmittel und Polymer betragen im diskontinuierlichen Prozeß im allgemeinen 80 bis 1, vorzugsweise 50 bis 10, insbesondere 40 bis 15 Gew.-%.

- 10 Die Reaktion wird im allgemeinen bei Temperaturen zwischen 0 und 500°C, vorzugsweise zwischen 20 und 250°C, insbesondere zwischen 60 und 220°C, durchgeführt.

Die Reaktion wird im allgemeinen bei Drücken von 1 bar bis 1000 bar, vorzugsweise 20 bis 300 bar, insbesondere 40 bis 200 bar, durchgeführt.

15

Der Palladium-Katalysator kann bei vergleichbarer Aktivität sowohl reduziert als auch unreduziert in der betreffenden Reaktion eingesetzt werden. Für ein technisches Verfahren ist es weitaus günstiger den Katalysator unreduziert einzusetzen und keinen zusätzlichen teuren Reduktionsschritt des Katalysators wie in WO 96/34 896

20

durchzuführen.

Beispiele:

5 Durch Lichtstreuung werden die absoluten Molgewichte \bar{M}_w (Gewichtsmittel) des Ausgangspolymers und des hydrierten Produktes bestimmt. Membranosmose liefert die absoluten Molekulargewichte \bar{M}_n (Zahlenmittel). In dem Beispiel 2 entspricht der relative Wert \bar{M}_w der GPC-Messung (Gel-Permeations-Chromatographie, Tetrahydrofuran als Elutionsmittel) gegenüber Polystyrolstandards den ermittelten absoluten Molekulargewichten des eingesetzten Polystyrols.

10 **Beispiele 1 und 2**

Die in den Beispielen verwendeten Katalysatoren sind in Tabelle 1 charakterisiert.

15 Ein 1l-Autoklave wird mit Inertgas gespült. Die Polymerlösung und gegebenenfalls der unreduzierte Katalysator werden zugegeben (Tabelle 2). Nach dem Verschließen wird mehrmals mit Schutzgas, dann mit Wasserstoff beaufschlagt. Nach dem Entspannen wird der jeweilige Wasserstoffdruck eingestellt und der Ansatz unter Rühren auf die entsprechende Reaktionstemperatur geheizt. Der Reaktionsdruck wird nach Einsetzen der Wasserstoffaufnahme konstant gehalten.

20

Die Reaktionszeit ist die Zeit vom Aufheizen des Ansatzes bis zur vollständigen Hydrierung des Polystyrols beziehungsweise die Zeit bis die Wasserstoffaufnahme ihrem Sättigungswert zustrebt.

25

Nach beendeter Reaktion wird die Polymerlösung filtriert. Das Produkt wird in Methanol gefällt und getrocknet. Das isolierte Produkt zeigt die in der Tabelle aufgeführten physikalischen Eigenschaften.

Tabelle 1: Physikalische Charakterisierung der eingesetzten Katalysatoren

Katalysator-Nr.	Stickstoff-Porenvolumen für Porendurchmesser von $< 600 \text{ \AA}$	Gesamtes Quecksilber-Porenvolumen für Porendurchmesser von $38 \text{ \AA} - 15 \text{ \mu m}$	Quecksilber-Porenvolumen für Porendurchmesser von $1000 \text{ \AA} - 10000 \text{ \AA}$	N ₂ Porenvolumen für Porendurchmesser $< 600 \text{ \AA}$ / gesamtes Quecksilber Porenvolumen	Porenvolumen für Porendurchmesser $1000 \text{ \AA} - 10000 \text{ \AA}$ / gesamtes Quecksilber Porenvolumen ($38 \text{ \AA} - 15 \text{ \mu m}$)	mittlere Porendurchmesser ¹	spezifische Gesamtoberfläche (BET) ²	Metallgehalt
1	mm ³ /g 32	mm ³ /g 767	mm ³ /g 480	% 4	% 63	Å 2722	m ² /g 11,9	% 0,5

- Katalysator: Engelhard De Meern, Niederlande, C 586-102, Palladium auf Aluminiumoxid
- 1) mittlere Porendurchmesser, gemessen nach Quecksilber Porosimetrie (DIN 66133)
- 2) spezifische Stickstoff Gesamtoberfläche nach Brunauer, Emmett und Teller (BET, DIN 66131, DIN 66132)

Tabelle 2

Hydrierung von Polystyrol in Abhängigkeit des Katalysators, Lösungsmittelsystems und der Reaktionstemperatur

Beispiel-Nr.	Katalysator	Polymer Masse g	Lösungs-Mittel ³⁾ ml	Katalysator Masse g	Reaktions-Temperatur °C	H ₂ -Druck Bar	Reaktions-zeit min	Hydrier-grad ⁴⁾ %	Tg (DSC) °C	Mw 10 ³ g/mol
1 Vergleich US-A 5612422	5 % Pt/SiO ₂	200 ¹⁾ $\bar{M}_w \sim$ 200000 g mol ⁻¹	2300 CH	13,5	150	875 (psig)	110	98,4	146,6	-
2 erfindungs- gemäß	0,5 % Pd/Al ₂ O ₃ 5)	100,2 ²⁾	300 CYH	12,5	200	100	130	100	147	171

¹⁾ Polystyrol ($\bar{M}_w \sim 200.000$ g mol⁻¹)²⁾ Polystyrol Type 158 k, $\bar{M}_w = 280.000$ g/mol, BASF AG, Ludwigshafen, Deutschland³⁾ CYH = Cyclohexan⁴⁾ Ermittelt durch ¹H-NMR Spektroskopie⁵⁾ Engelhard De Meern, Niederlande, Palladium auf Aluminiumoxid, C 586-102

Der Platin-Katalysator (Tabelle 2), der dadurch charakterisiert ist, daß 98 % des Porenvolumens einen Porendurchmesser größer 600 Å aufweist, hydriert Polystyrol bei 150°C nach 110 min nicht vollständig. (98,4 % Vergleichsbeispiel 1).

- 5 Der Platin-Katalysator gemäß Beispiel 5 aus US-A 5 612 422 führt zu einem ca. 20 %igen Abbau der Molekulargewichte \bar{M}_w .

10 Molekulargewichtsabbau führt insbesondere zu einer Verkleinerung des mittleren Molekulargewichts \bar{M}_w (US-A 5 612 422). Die erfindungsgemäße Hydrierung in Gegenwart des Aluminiumoxid Katalysators zeigt überraschenderweise auch bei hohen Reaktionstemperaturen keinen signifikanten Abbau des absoluten Molekulargewichts \bar{M}_w .

15 Das absolute mittlere Molekulargewicht \bar{M}_w des hydrierten Produkts entspricht im Rahmen der Meßgenauigkeit dem Wert des eingesetzten Polystyrols.

20 Der spezielle Aluminiumoxid Katalysator der vorliegenden Erfindung zeigt gegenüber Vergleichsbeispiel 1 eine vergleichbare Reaktionszeit jedoch bei gleichzeitiger vollständiger Hydrierung, bei höherem Molekulargewicht des eingesetzten Polystyrols und höherer Polymerkonzentration.

25 Der Katalysator zeichnet sich durch eine 10-fach niedrigere Gewichtsmenge des Edelmetalls aus, welches zu einer signifikanten Reduktion der Rohstoffkosten führt und damit die Wirtschaftlichkeit des Hydrierverfahrens verbessert.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart von Katalysatoren, wobei als Katalysator ein Metall oder Gemisch von Metallen der VIII. Nebengruppe des Periodensystems zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid eingesetzt wird und das Porenvolumen der Porendurchmesser des Katalysators zwischen 1000 - 10000 Å, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, im allgemeinen 100 - 15 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, beträgt.
5
2. Verfahren gemäß Anspruch 1, wobei das Porenvolumen 90 bis 20 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, beträgt.
10
3. Verfahren gemäß Anspruch 2, wobei das Porenvolumen 80 bis 25 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, beträgt.
15
4. Verfahren gemäß Anspruch 3, wobei das Porenvolumen 70 bis 30 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, beträgt.
- 20 5. Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Katalysatoren ein Porenvolumen, gemessen nach der Stickstoff-sorption von kleiner 10 % für Porendurchmesser kleiner 600Å aufweisen.
- 25 6. Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Metalle ausgewählt sind aus Nickel, Platin, Ruthenium, Rhodium und Palladium.
7. Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Verfahren in Gegenwart von für Hydrierreaktionen verwendbaren Lösungsmittel durchgeführt wird.
30

8. Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Katalysator eine Oberfläche größer $5 \text{ m}^2/\text{g}$ aufweist.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/00576

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08F8/04 C08F8/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 814 098 A (BASF AG) 29 December 1997 (1997-12-29) cited in the application abstract; claims 1-10 page 5, line 7,8 page 7, line 28-57 page 9, line 45-60 page 11, line 15-60 page 12, line 10-31,34-60 ---	1-8
X	EP 0 378 104 A (DOW CHEMICAL CO) 18 July 1990 (1990-07-18) abstract; claims 1-9 page 3, line 35-37,48-60 page 4; table 1 page 6, line 5 page 7, line 30 ---	1,2,6,8
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

14 April 2000

Date of mailing of the international search report

28/04/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Bergmans, K

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/00576

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>GB 2 011 911 A (JOHNSON MATTHEY CO LTD) 18 July 1979 (1979-07-18) page 1 - line 45-54 page 2, line 8-11 abstract; claims 1-8 -----</p>	1-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/00576

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0814098	A	29-12-1997	DE 19624485 A	02-01-1998
			DE 19624835 A	02-01-1998
			CN 1174753 A	04-03-1998
			JP 10072377 A	17-03-1998
EP 0378104	A	18-07-1990	US 5028665 A	02-07-1991
			AT 111110 T	15-09-1994
			BR 9000066 A	16-10-1990
			CA 2007317 A	09-07-1990
			DE 69012151 D	13-10-1994
			JP 2265647 A	30-10-1990
			US 5110779 A	05-05-1992
GB 2011911	A	18-07-1979	BE 871348 A	15-02-1979
			DE 2845615 A	26-04-1979
			GB 2087403 A, B	26-05-1982
			JP 54077689 A	21-06-1979
			NL 7810461 A	24-04-1979

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/00576

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08F8/04 C08F8/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08F

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 814 098 A (BASF AG) 29. Dezember 1997 (1997-12-29) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung; Ansprüche 1-10 Seite 5, Zeile 7,8 Seite 7, Zeile 28-57 Seite 9, Zeile 45-60 Seite 11, Zeile 15-60 Seite 12, Zeile 10-31,34-60 ---	1-8
X	EP 0 378 104 A (DOW CHEMICAL CO) 18. Juli 1990 (1990-07-18) Zusammenfassung; Ansprüche 1-9 Seite 3, Zeile 35-37,48-60 Seite 4; Tabelle 1 Seite 6, Zeile 5 Seite 7, Zeile 30 ---	1,2,6,8

-/--

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

14. April 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

28/04/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Bergmans, K

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/00576

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>GB 2 011 911 A (JOHNSON MATTHEY CO LTD)</p> <p>18. Juli 1979 (1979-07-18)</p> <p>Seite 1 - Zeile 45-54</p> <p>Seite 2, Zeile 8-11</p> <p>Zusammenfassung; Ansprüche 1-8</p> <p>-----</p>	1-8

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die derselben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/00576

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0814098 A	29-12-1997	DE 19624485 A	02-01-1998
		DE 19624835 A	02-01-1998
		CN 1174753 A	04-03-1998
		JP 10072377 A	17-03-1998
EP 0378104 A	18-07-1990	US 5028665 A	02-07-1991
		AT 111110 T	15-09-1994
		BR 9000066 A	16-10-1990
		CA 2007317 A	09-07-1990
		DE 69012151 D	13-10-1994
		JP 2265647 A	30-10-1990
		US 5110779 A	05-05-1992
GB 2011911 A	18-07-1979	BE 871348 A	15-02-1979
		DE 2845615 A	26-04-1979
		GB 2087403 A, B	26-05-1982
		JP 54077689 A	21-06-1979
		NL 7810461 A	24-04-1979

THIS PAGE BLANK (USPTO)

09/890737 16
VERTRAG ÜBER INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 24 APR 2001

WIPO PCT

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 510-WO KM	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/00576	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26/01/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 05/02/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08F8/04		
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 01/08/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 20.04.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Boletti, C Tel. Nr. +49 89 2399 8527 

1/17/04 01:29

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/00576

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-12 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-8 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/00576

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	2-8
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-8
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PUNKT V

Es wird auf folgendes Dokument verwiesen:

D1: EP-A-0378104 (s. Ansprüche 4, 6-10; S. 3, Z. 48-50; Träger SCM-9X am S. 4;
S. 6, Z. 5; Beispiel 6)

Der Gegenstand des vorliegenden Anspruchs 1 ist nicht neu im Sinne des Artikels 33(2) PCT, da er aus der D1 bereits bekannt ist.

Der Gegenstand der Ansprüche 2 bis 8 ist entweder aus D1 bereits bekannt oder beruht nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit (Art. 33(3) PCT), weil die beanspruchten Maßnahmen für den Fachmann eine übliche Praxis darstellen.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference Le A 33 510-WO	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/00576	International filing date (day/month/year) 26 January 2000 (26.01.00)	Priority date (day/month/year) 05 February 1999 (05.02.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08F 8/04		
Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of _____ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement.
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 01 August 2000 (01.08.00)	Date of completion of this report 20 April 2001 (20.04.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/00576

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):

☒ the international application as originally filed.

☐ the description, pages 1-12, as originally filed,
pages _____, filed with the demand,
pages _____, filed with the letter of _____,
pages _____, filed with the letter of _____.

☐ the claims, Nos. 1-8, as originally filed,
Nos. _____, as amended under Article 19,
Nos. _____, filed with the demand,
Nos. _____, filed with the letter of _____,
Nos. _____, filed with the letter of _____.

☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
sheets/fig _____, filed with the demand,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

☐ the description, pages _____

☐ the claims, Nos. _____

☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/EP 00/00576

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	2-8	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Reference is made to the following document:

D1: EP-A-0 378 104 (see Claims 4 and 6-10; page 3, lines 48-50; support SCM-9X on page 4; page 6, line 5; and Example 6).

The subject matter of the present Claim 1 is not novel (PCT Article 33(2)), since it is already known from D1.

The subject matter of Claims 2 to 8 is either already known from D1 or does not involve an inventive step (PCT Article 33(3)), since the claimed measures are common practice for a person skilled in the art.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

09/890737

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AM DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 510-WO KM	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/ 00576	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26/01/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 05/02/1999
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. ---

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ keine der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.



THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08F8/04 C08F8/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08F

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ^o	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 814 098 A (BASF AG) 29. Dezember 1997 (1997-12-29) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung; Ansprüche 1-10 Seite 5, Zeile 7,8 Seite 7, Zeile 28-57 Seite 9, Zeile 45-60 Seite 11, Zeile 15-60 Seite 12, Zeile 10-31, 34-60	1-8
X	EP 0 378 104 A (DOW CHEMICAL CO) 18. Juli 1990 (1990-07-18) Zusammenfassung; Ansprüche 1-9 Seite 3, Zeile 35-37, 48-60 Seite 4; Tabelle 1 Seite 6, Zeile 5 Seite 7, Zeile 30	1,2,6,8

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

<p>^o Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :</p> <p>*A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</p> <p>*E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>*L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</p> <p>*O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</p> <p>*P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p>	<p>*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</p> <p>*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden</p> <p>*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</p> <p>*G* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p>
---	---

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
14. April 2000	28/04/2000
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Bergmans, K

THIS PAGE BLANK (USPTO)

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	GB 2 011 911 A (JOHNSON MATTHEY CO LTD) 18. Juli 1979 (1979-07-18) Seite 1 - Zeile 45-54 Seite 2, Zeile 8-11 Zusammenfassung; Ansprüche 1-8 -----	1-8

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/00576

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0814098	A	29-12-1997	DE 19624485 A	02-01-1998
			DE 19624835 A	02-01-1998
			CN 1174753 A	04-03-1998
			JP 10072377 A	17-03-1998
EP 0378104	A	18-07-1990	US 5028665 A	02-07-1991
			AT 111110 T	15-09-1994
			BR 9000066 A	16-10-1990
			CA 2007317 A	09-07-1990
			DE 69012151 D	13-10-1994
			JP 2265647 A	30-10-1990
			US 5110779 A	05-05-1992
GB 2011911	A	18-07-1979	BE 871348 A	15-02-1979
			DE 2845615 A	26-04-1979
			GB 2087403 A,B	26-05-1982
			JP 54077689 A	21-06-1979
			NL 7810461 A	24-04-1979

THIS PAGE BLANK (USPTO)